

Abstract and Family Search of Patent # JP58-25930

? b 351

Set	Items	Description
?	s	pn=jp 58025930
	S1	1 PN=JP 58025930
?	t	1/29/1

1/29/1
DIALOG(R) File 351:DERWENT WPI
(c)1997 Derwent Info Ltd. All rts. reserv.

003670395 WPI Acc No: 83-30366K/13
XRAM Acc No: C83-029706
XRPX Acc No: N83-055004

Prod. of polyolefin laminated film involves drawing and heating of
co-extruded laminate under specified conditions
Patent Assignee: (TORA) TORAY IND INC

Patent Family:

CC Number	Kind	Date	Week
JP 58025930	A	830216	8313 (Basic)

Priority Data (CC No Date): JP 81124750 (810811)

Abstract (Basic): The film is produced by coextruding (A) a crystalline low mol. wt. polyolefin having limiting viscosity 0.5-1.5 as the central layer and (B) crystalline polyolefins having higher m.pt. than that of component (A) in such a manner that both sides of component (A) are laminated with component (B); drawing the three-layer laminated sheet biaxially in the length-direction and the width-direction; and heating the laminated sheet at a temp. above the m.pt. of component (A) and below the m.pt. of component (B) and drawing the film in the length-direction at a drawing rate of 1.1-2 times. The polyolefin film can be cut by hand in an arbitrary direction and does not whiten during cutting.

Component (A) pref. includes olefin copolymers having limiting viscosity 0.5-1.5 (propylene-other olefin copolymers, etc.). The central layer is 5-50, pref. 10-40, microns thick. The pref. difference in m.pt. between components (A) and (B) is 1-50 deg.C. A layer comprising component (B) is 0.5-8, pref. 1-5, microns thick. (5pp)

⑨ 日本国特許庁 (JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報 (A)

昭58-25930

⑪ Int. Cl.³
B 29 D 7/24
9/00
// B 32 B 27/32

識別記号
105

庁内整理番号
6653-4F

⑬ 公開 昭和58年(1983)2月16日

発明の数 1
審査請求 未請求

(全 5 頁)

⑭ ポリオレフィン積層フィルムの製造方法

株式会社滋賀事業場内

⑮ 特 願 昭56-124750

⑯ 出 願 昭56(1981)8月11日

⑰ 発 明 者 綱島研二

大津市園山一丁目1番1号東レ
株式会社滋賀事業場内

⑱ 発 明 者 吉井俊哉

大津市園山一丁目1番1号東レ

⑲ 発 明 者 福山武男

大津市園山一丁目1番1号東レ
株式会社滋賀事業場内

⑳ 出 願 人 東レ株式会社

東京都中央区日本橋室町2丁目
2番地

㉑ 代 理 人 弁理士 小川信一 外2名

明 細 書

1. 発明の名称

ポリオレフィン積層フィルムの製造方法

2. 特許請求の範囲

融点粘度 0.5 ~ 1.5 の結晶性低分子量ポリオレフィン(A)を中心層とし、これより融点の高い結晶性ポリオレフィン(B)が中心層の両側に積層されるように、これらを共押出しすることにより3層積層シートを形成し、これを長手方向及び幅方向に二軸延伸したのち、結晶性低分子量ポリオレフィン(A)の融点以上かつ結晶性ポリオレフィン(B)の融点以下の温度で熱処理し、更にこれを長手方向に1.1 ~ 2倍延伸することを特徴とするポリオレフィン積層フィルムの製造方法。

3. 発明の詳細な説明

本発明はポリオレフィン積層フィルムの製造方法に関し、特に任意方向の手切れ性がよく、切断箇所において白化を生じることなく、かつ実用強さにすぐれたポリオレフィン積層フィルムの製

造方法に関する。

従来、このように手で切ることのできるポリオレフィンフィルムは、いろいろ提案されているが、いずれも次に述べるような欠点がある。

- 1) 分子配向を利用する方法(実公昭50-44519など): 手切れ性があるのは分子配向の方向のみである(任意の方向には切れない)。
- 2) ポリスチレンのように脆いフィルムを利用する方法(特開昭55-28814など): ポリスチレンの耐溶剤性や耐熱性が劣る。
- 3) フィルムに物理的凹凸をつける方法(特開昭54-137077など): フィルムに凹凸が入るので、用途が限定される。
- 4) 電子線などを照射して脆くする方法(特開昭53-106779など): 手切れ性と実用強さとの両立がむずかしい。

そこで本発明者らは任意方向の手切れ性と実用強さを備えたポリオレフィンフィルムとして、低分子量、低融点のポリオレフィンを中心層と

し、その両側にこれより高融点のポリオレフィンフィルムを積層した3層ポリオレフィンフィルムをすでに提案した。そして、この積層フィルムを製造する方法としては、まず上記の3層積層フィルムを共押出して長手方向及び幅方向に二軸延伸後、中心層のポリマ融点と両表層のポリマ融点との間の温度で熱処理することにより、中心層のポリマのみを無配向状態に戻すものであり、この方法により得られたフィルムは、かなりすぐれた手切れ性と実用強さを示すが、手で切つたとき切断箇所が白化が生じること及び長手方向への実用強さが若干不足気味となる傾向にあった。

したがって、本発明は任意方向の手切れ性と実用強さを備え、かつ切断箇所の白化がないポリオレフィンフィルムを提供するものである。

即ち、本発明は、極限粘度0.5～1.5の結晶性低分子量ポリオレフィン(A)を中心層としこれより融点の高い結晶性ポリオレフィン(B)が中心層の両側に積層されるようにこれらを共押出し

することにより3層積層シートを形成しこれを長手方向及び幅方向に二軸延伸したのち、結晶性低分子量ポリオレフィン(A)の融点以上かつ結晶性ポリオレフィン(B)の融点以下の温度で熱処理し、更にこれを長手方向に1.1～2倍延伸することを特徴とするポリオレフィン積層フィルムの製造方法である。

本発明の積層フィルムを中心層(A)として用いる結晶性低分子量ポリオレフィンとは、プロピレンと他のオレフィン(炭素数2および4～10)との共重合体(プロピレン含量70～99.5重量%)、エチレンと他のオレフィン(炭素数3～10)との共重合体(エチレン含量70～99.5重量%)、ブテン-1と他のオレフィン(炭素数2, 3および5～10)との共重合体(ブテン-1含量70～99.5重量%)、4-メチルペンテン-1と他のオレフィン(炭素数2～10)との共重合体(4-メチルペンテン-1含量70～99.5重量%)などのオレフィン共重合体(2元共重合体だけでなく、3元あるいはそれ以上の共重合体

を含む。共重合体はランダム共重合、ブロック共重合のいずれでもよい)、およびプロピレン、エチレン、ブテン-1、4-メチルペンテン-1などの炭素数2～10のオレフィンのホモポリマであり、極限粘度が0.5～1.5の範囲、好ましくは0.7～1.2の範囲にあるものである。特に好ましいのは、極限粘度0.5～1.5の範囲の上記オレフィン共重合体であり、さらに好ましいものとしては、極限粘度0.5～1.5の範囲の上記オレフィン共重合体に、極限粘度0.5～1.5の範囲の上記オレフィンホモポリマを混合した混合物である(混合物重量基準で、オレフィンホモポリマ量が2～40%)。このような結晶性低分子量ポリオレフィンの極限粘度は、0.5～1.5、好ましくは0.7～1.2の範囲にあることが本発明目的達成のために必要である。この範囲より低い極限粘度では、フィルムが脆くなりすぎて実用強さが不足となり、また逆に、この範囲より高い極限粘度では、任意方向の手切れ性がなくなってくる。次に、この融

点性低分子量ポリオレフィンからなる中心層(A)の厚さは、5～50 μm 、好ましくは10～40 μm の範囲にあることが望ましい。この範囲より薄い場合は、実用強さが不足するとともに、薄すぎるため取り扱い作業性が劣つたものとなつてしまう。一方、この範囲より厚い場合は、任意方向の手切れ性が不足してくる。

次に層(A)の両面に積層される層(B)について説明する。層(B)を構成するポリマは層(A)を構成するポリマより融点の高い結晶性ポリオレフィンである。そして層(A)と層(B)のポリマの融点差は1～50℃が好ましく、更に好ましくは、5～30℃の範囲である。層(B)に用いる結晶性ポリオレフィンとしては、プロピレンエチレン、ブテン-1、4-メチルペンテン-1、あるいはこれら以外の炭素数10以下のオレフィンのホモポリマ、コポリマあるいはブロックコポリマである。そして極限粘度は0.5～2.0、好ましくは0.7～1.5の範囲のものが望ましい。この層(B)の一枚の厚さは0.5～8 μm 、好ましくは

1～5 μm の範囲であることが望ましい。この範囲より薄い場合は実用強さの不足したフィルムとなり逆にこの範囲より厚くなると任意方向の手切れ性がなくなる。

本発明の目的である任意方向の手切れ性と、実用強さを兼ねそなえる範囲は、本積層フィルムの落球衝撃強さでうまく表現することができる。つまり、任意方向の手切れ性を持つためには、この落球衝撃強さが25 $\text{kg}\cdot\text{cm}$ 以下、好ましくは20 $\text{kg}\cdot\text{cm}$ 以下であることが極めて望ましいことである。また逆に、実用強さを持つためには、落球衝撃強さが2 $\text{kg}\cdot\text{cm}$ 以上、好ましくは5 $\text{kg}\cdot\text{cm}$ 以上あることが極めて望ましい。従つて、本発明の目的である任意方向の手切れ性と実用強さを兼ね備えるということを数値で言い換えれば、落球衝撃強さが2～25 $\text{kg}\cdot\text{cm}$ 、好ましくは5～20 $\text{kg}\cdot\text{cm}$ の範囲の値を持つ3層積層ポリオレフィンフィルムと表現することもできる。

次に本発明フィルムの製造方法の一般例を述べる。

好ましくは5～30℃高いようにしておく。

このような3層積層シートを、同時二軸延伸あるいは逐次二軸延伸のような公知の二軸延伸方法で、長手方向および幅方向に各々1.5～15倍、好ましくは2～10倍二軸延伸する。この時の延伸温度は、(A)層ポリマの融点-10℃以上、(B)層ポリマの融点以下の範囲とすることが好ましい。次いで、この二軸延伸されたフィルムを、(A)層ポリマの融点以上、(B)層ポリマの融点以下の温度範囲で、1～100秒間、好ましくは3～30秒間熱処理する。この熱処理は、フィルムを緊張状態に保つて行なう緊張熱処理でもよく、あるいは、フィルムの長手方向および/または幅方向に、元の長さの1～20%弛緩を許しつつ行なう弛緩熱処理でもよく、あるいはこれらの組合せでもよい。

次いでこのフィルムを長手方向に1.1～2倍延伸する。延伸温度は第1回目の延伸と同様(A)層ポリマの融点-10℃以上でかつ(B)層ポリマの融点以下の範囲であることが好ましい。

まず、結晶性低分子量ポリオレフィンを(A)層とし、これより高融点の結晶性ポリオレフィンを(B)層として、B/A/Bの形の3層積層シートを公知の共押出方法で製造する。この場合、(A)層ポリマの極限粘度は、フィルム製造終了後の(A)層の極限粘度が0.5～1.5、好ましくは0.7～1.2の範囲に納まるようなものを用いる。また、(B)層ポリマの極限粘度は、フィルム製造終了後の(B)層の極限粘度が0.5～2.0、好ましくは0.7～1.5の範囲に納まるようなものを用いることが望ましい。共押出などを容易化するためには、(B)層の極限粘度は、上記範囲内で、(A)層の極限粘度の±20%、好ましくは±10%以内の範囲に入っていることが望ましい。この3層積層シートの(A)層および(B)層の厚さは、フィルム製造終了後の(A)層の厚さが5～50 μm 、好ましくは10～40 μm の範囲に入るようにし、また(B)層の厚さが0.5～8 μm 、好ましくは1～5 μm の範囲に入るようにする。また、(B)層のポリマの融点は、(A)層のそれより、1～50℃、

この温度範囲を低温側にはずれても、高温側にはずれても延伸中に切断が起りやすくなるからである。また延伸倍率は1.1～2倍にする必要があり、1.1倍以下であると白化防止の効果がなく、2倍以上であると切断の危険がある。そして好ましい範囲は1.5～1.8倍である。

かくして本発明のポリオレフィン積層フィルムは製造されるが、このあと必要に応じて第1回の熱処理と同条件の熱処理を行なうこともできるし、また、コロナ放電処理などの表面活性処理を行なうこともできる。

以下、実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本実施例における極限粘度、融点、落球衝撃強さおよび白化の評価は次のようにして測定した。

(1) 極限粘度

ポリマ0.1gを135℃のテトラリン100mlに完全溶解させ、この溶液をFisher-Simmons型の粘度計で135±0.05℃の恒温槽中で測定して比粘度Sを求める。これ

より、次式によつて、極限粘度を計算する。

$$\text{極限粘度} = S / [0.1(1 + 0.22S)]$$

なお、本発明で中心層(W)あるいは表面層(B)のポリマの極限粘度とは、該層を構成しているポリマ0.1gを採取して、上記方法で測定した値である。従つて、該層がポリマの混合物から成る場合でも、該ポリマ混合物0.1gを用いて測定した値をフィルム各層の極限粘度とする。

(2) 融点

走査型熱分析装置(パーキン・エルマー社製のDSC-II型)中に、ポリマ5mgをセットし、窒素雰囲気下で加熱し、290℃まで昇温する(昇温速度20℃/分)。この温度に60秒間保持した後、該サンプルを取り出して、ただちに液体窒素中に投入して急冷する。このサンプルを再び測定セルにセットし、昇温速度20℃/分で昇温していき、結品の融解に伴う吸熱ピークのピーク部の温度を該ポリマの融点とする。なお、ポ

リマが混合物やブロック共重合体から成るために、2つ以上のピークがあらわれる場合には、ピーク高さが最も高いピークのピーク部の温度を該ポリマの融点とみなす。

(3) 落球衝撃強さ

20±0.5℃の恒温室中にフィルムを一昼夜置き、その状態で測定する。フィルムを5cm直径の枠にびんと張つた状態で固定する。その真上の2mの高さから鋼球(直径38.1mm)を落とす。鋼球がフィルムを破壊した直後の鋼球の落下速度を光電管で測定し、この速度をV(cm/sec)とする。また、フィルムがない場合の該当部での落下速度をV₀(cm/sec)とする。すると、フィルムを破るのに要したエネルギー(これを落球衝撃強さとする)は次式で求められる。

$$\text{落球衝撃強さ (kg} \cdot \text{cm}^2) = M(V_0^2 - V^2)/2g$$

但し、M: 鋼球の重量(kg)

g: 重力加速度(980cm/sec²)

(4) 白化の評価

フィルムを10mm幅、100mm長になるように、テンシロンのクリップに固定し、25℃で10mm/分の引張速度で110mmになるまで引張り、サンプルのヘイズの値が70%以上になるものを白化したという。

実施例 1

次の2種類のポリマを用意した。

ポリマA: プロピレン・エチレンランダム共重合体、エチレン含有量1.8重量%、極限粘度1.0、融点156℃、酸化防止剤として、2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノール0.2重量%および荷電防止剤として、純度99%以上のステアリン酸モノグリセリドを0.6重量%含有させた。

ポリマB: プロピレンホモポリマ、極限粘度1.15、融点164.5℃、アイソタクチック度97.2%。

これら2種のポリマを2台の別々の押出機に供給して、200℃で溶融押出し、3個のマニホールドを有する3層積層用口金の中で溶融体同老

を合流せしめて、中心層がポリマAからなり、両表面層がポリマBからなる3層積層シートの形とした。これを口金から出して、ただちに表面温度35℃の冷却用ドラムに接触せしめて、冷却固化した。この3層積層シートを、145℃の予熱ロールに接触させて十分に予熱した後、赤外線ヒータで急速に加熱しつつ、長手方向に5倍延伸し、ただちに20℃の冷却ロールに接触させて急冷した。この一軸延伸シートを再び150℃の熱風で十分に予熱した後、幅方向に8倍延伸し、その緊張状態を保つたまま、155℃の熱風中で5秒間熱処理し、次いで同じ熱風中でフィルムを元の幅の65分の弛緩を許容しつつ、3秒間弛緩熱処理し、次いで再度同じ熱風中で3秒間の緊張熱処理をし、しかる後、室温までゆるやかに冷却した(平均冷却速度30℃/秒)。得られた延伸熱処理フィルムを更に155℃の予熱ロールに接触させて予熱した後、赤外線ヒータで急速に加熱して長手方向に1.8倍延伸し、ただちに150℃の熱処理ロール上で長手方向に

5%のリラックスをさせ、続いて90℃に加熱されたロール上で長手方向に1%のリラックスをさせ、次いで20℃の冷却ロールに接触させて急冷した。得られたフィルムの高張力強さは15 kg/cm、白化は全くせず、すぐれた任意方向手切れ性、実用強さを備え、かつ切断箇所には白化が生じないフィルムであることがわかった。

代理人 弁理士 小 川 信 一
弁理士 野 口 實 用
弁理士 高 下 和 彦